

Fe-Si 多結晶薄膜の軟磁性に関する研究

著者	細野 彰彦
号	1271
発行年	1990
URL	http://hdl.handle.net/10097/6544

氏 名	ほそ の あき ひこ 細 野 彰 彦
授 与 学 位	工 学 博 士
学位授与年月日	平成 2 年 4 月 11 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 5 条第 1 項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 応用物理学専攻
学 位 論 文 題 目	Fe-Si 多結晶薄膜の軟磁性に関する研究
指 導 教 官	東北大学教授 後藤 公美
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 後藤 公美 東北大学教授 齋藤 好民 東北大学教授 山田 昌 東北大学助教授 宮崎 照宣 東北大学助教授 島田 寛

論 文 内 容 要 旨

第 1 章 序 論

近年, 電子回路の小型化, 集積化の進歩に対応するため, 磁気素子および磁気ヘッドの小型化, 高周波化が求められている。これらの要求を満たす磁心材料として, 高周波で高透磁率, 低保磁力を示す軟磁性材料が必要されており, パーマロイ, センダスト等の多結晶薄膜や Co-Zr 系の非晶質薄膜が研究されている。これらの軟磁性合金薄膜の飽和磁束密度 ($4\pi M_s$) は 11000G 程度であり, 集積化を考えた場合や, 進歩の著しい高保磁力を有する高密度記録媒体用の磁気ヘッド材料として使用する場合には, 不十分である。そこで, 高飽和磁化を有し, しかも高透磁率を示す軟磁性薄膜材料の研究開発が必要である。

高飽和磁化を有する磁性材料としては Fe が挙げられるが, 単に薄膜化しただけでは, 軟磁性は得られない。その原因は, Fe の結晶磁気異方性と磁歪定数が大きく, 軟磁性薄膜の条件を満たさないためと考えられている。Fe に Si 等を添加することにより, 磁歪定数を小さくすることができ, 結晶磁気異方性は大きいので, 薄膜化した場合には軟磁性は得られない。

本研究においては, 高飽和磁化を有する Fe 系薄膜の軟磁性化の方法を提案し, その実験的検証を得ることを目的とする。

第 2 章 Fe 系多結晶薄膜の軟磁性の改善に関する検討

本章では, 高飽和磁化 Fe 系薄膜の軟磁性の改善を図る新しい方法について検討した。

Fe 薄膜の磁歪定数は、Si 等を添加することにより小さくすることができるが、結晶磁気異方性は軟磁性が得られる程には低下しない。しかし、Fe の各結晶面内に磁化方向がある場合の実効的な結晶磁気異方性 (K_{eff}) を計算で予測した結果、結晶面により大きな差が有ることが分かった。これを Fe-6.9wt %Si に適用すると、(111) 面では (100), (110) 面に比べて $1/600 \sim 1/20$ と非常に小さいことが分かった。また、(111) 面が配向している多結晶薄膜の保磁力 (H_c) と初透磁率 (μ_i) を K_{eff} から推定した結果、それぞれ $1.1 \sim 110e$, $370 \sim 11000$ と良好な軟磁性が期待できることが明らかになった。

そこで、実際に、(100), (110), (111) 配向 Fe-6.9wt %Si 薄膜を作製し、(111) 配向薄膜と他の配向薄膜の軟磁性を実験的に比較することにした。

第 3 章 ガラス基板上に作製した Fe および Fe-Si 薄膜の結晶配向と磁気特性

ガラス基板上にスパッタ方で Fe-Si 薄膜を作製し、結晶面の配向や軟磁性を調べた結果、作製条件を調整するだけでは、高配向薄膜は得られないこと、また、薄膜の保磁力は作製条件（基板温度等）や熱処理により敏感に変化することが明らかになった。

第 4 章 高配向 Fe-Si 多結晶薄膜を得るための下地膜と作製条件の検討

3 種類の高配向 Fe-Si 薄膜を得るために、ガラス基板上で特定の結晶面が配向する性質を持つ下地膜を利用し、この上に Fe-Si 薄膜を成長させ、Fe-Si 薄膜の配向を誘起させることを試みた。下地膜として 7 種類の膜について検討した結果、(100) 配向には MgO , (110) 配向には ZnO , (111) 配向には $ZnSe$ が適していることが分かった。

基板温度等の作製条件について更に詳しく検討し、配向性はロッキングカーブの測定により定量的に調べた。Fig. 1 に配向結晶軸の膜法線に対する分布範囲とその割合を示す。3 種類の配向薄膜とも良好な配向薄膜であり、膜法線に対して $0 \sim 10^\circ$ の範囲にある配向結晶の割合は、(100) 配向薄膜でほぼ 100%, (110) 配向薄膜で約 95%, (111) 配向薄膜で約 60% であった。

従来、原子密度が疎であるため、Fe 系合金の (111) 面を優先成長させることは困難であるとされていたが、 $ZnSe$ を下地膜とし作製条件を詳しく検討することにより、(111) 配向薄膜が実現できることを示した。

第 5 章 Fe-6.9wt %Si 単層膜の軟磁性

作製した 3 種類の配向薄膜の軟磁性を H_c , μ_i の測定により評価した。 H_c , μ_i の平均値は、(100) 配向薄膜では、 $H_c = 2.80e$, $\mu_i = 800$, (110) 配向薄膜では、 $H_c = 2.50e$, $\mu_i = 870$, (111) 配向薄膜では、 $H_c = 1.90e$, $\mu_i = 1720$ であった。この結果は、配向面の K_{eff} の値から期待される傾向と定性的には一致し、 K_{eff} の小さい (111) 配向薄膜で最もよい軟磁性が得られている。各配向膜の軟磁性は、 SiO_2 膜上の無配向に近い Fe-Si 薄膜に比べて改善されていた。その理由は、(100), (110) 配向薄膜では結晶粒の微細化によること、(111) 配向薄膜では K_{eff} が小さいことによることを明らかにした。

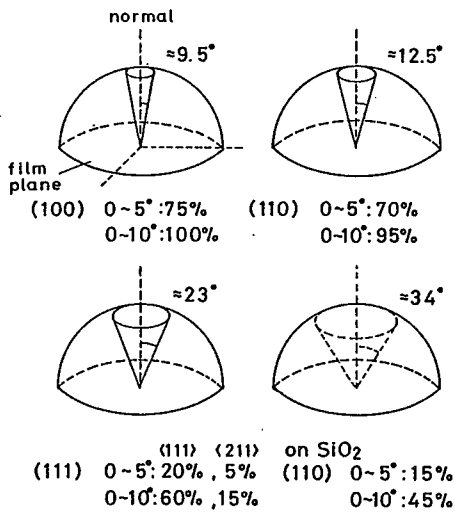


Fig. 1 各配向薄膜の配向結晶軸の分布と配向結晶の割合

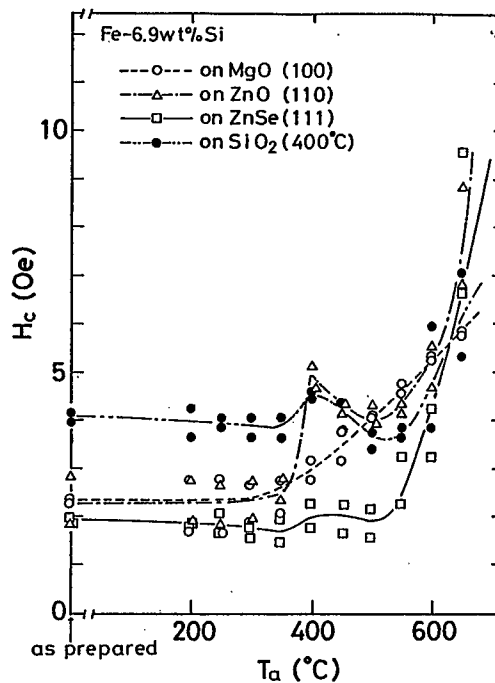


Fig. 2 配向薄膜の保磁力の熱処理温度依存性

応用面から重要な特性である軟磁性の熱的安定性について調べた。H_cの熱処理温度依存性をFig. 2に示す。(111)配向薄膜の保磁力が最も小さく、熱的安定性が最も良いことが分かる。(100)、(110)配向薄膜では350°C以上で保磁力が増大しているが、この原因は結晶粒の成長であることを示した。(111)配向薄膜では、結晶粒の成長が最も急速であったが、H_cの増大は500°Cまで見られない。これはK_{eff}が小さいためと推察される。この薄膜の熱的安定性は、従来の微細結晶の効果によるFe系軟磁性薄膜より150~200°C以上向上している。全ての配向薄膜において500°C以上の熱処理で軟磁性の急激な劣化が観察されたが、この原因がFe-Si結晶相自体の不安定性による磁歪の増大であることを確認した。

以上の結果から、結晶磁気異方性が大きい場合でも、K_{eff}が小さい結晶面を配向させれば軟磁性が改善されること、また、結晶粒の微細化による軟磁性薄膜に比べて熱的安定性が向上することが分かった。

第6章 積層化によるFe-6.9wt%Si膜の軟磁性の改善

非磁性層を中間層とし、配向Fe-6.9wt%Si薄膜を積層した。(111)配向の2層膜では、H_cが0.5Oeまで低下した。他の配向2層膜でもH_cが単層膜より低下した。また、(100)、(110)配向で

は熱的安定性の向上が見られた。

第 7 章 総 括

本研究により得られた結果の総括を記した。また、これらの結果から、高飽和磁化の Fe 系多結晶薄膜の軟磁性の向上のためには、結晶配向によって実効的な結晶磁気異方性を低下させる方法が有効であり、3 種類の高配向 Fe-6.9wt %Si 薄膜を作製することによって、この方法の有効性を実験的にも検証できたという結論が得られた。

審 査 結 果 の 要 旨

最近の集積化された磁気素子や高密度・高保磁力磁気記録媒体に対応する磁気ヘッド用材料として、高飽和磁化を有する軟磁性材料の開発が求められている。この為、高飽和磁化を持つ新しい磁性薄膜の合成、Fe系合金薄膜の結晶の微細化などが活発に研究されている。著者は独自の観点から、Fe系多結晶薄膜の軟磁性化の新しい方法を提案し、その実験的結晶を行った。即ち、高飽和磁化を持ち、かつ磁歪定数の小さいFe-6.9wt %Si合金に着目し、主要な結晶面について保磁力、初透磁率を計算し、(111)面の場合、他の結晶面より優れた軟磁性が期待されることを推定した。次にこれに基づき、主要な結晶面配向を持つ多結晶薄膜の育成法を詳細に研究し、上記の推定と定性的に一致する実験結果を得た。本論文はこれらの成果をまとめたもので、全編7章よりなる。

第1章は序論である。

第2章では、磁歪定数の小さいFe-6.9wt %Si合金について、(100)、(110)、(111)結晶面における実効的な結晶磁気異方性定数を用いて、これらの結晶面が膜面に平行に配向した多結晶膜の場合、回転磁化過程による保磁力と初透磁率を計算した。この結果、(111)配向薄膜において最良の軟磁性が実現されることを明らかにしている。

第3章では、ガラス基板を用いた場合、主要な結晶面が配向した薄膜が得られるか否かについて実験的な検討を行ったが、良好な配向薄膜は得られなかった結果について述べている。

第4章は、(100)、(110)、(111)結晶面が配向したFe-6.9wt %Si薄膜を得る為、下地膜の探索と薄膜育成条件の検討、および得られた配向薄膜の配向性の定量的評価を行った結果を述べたものである。下地膜としてMgO膜、ZnO膜を用いることにより、それぞれ(100)および(110)配向薄膜が得られ、また育成が困難とされていた(111)配向薄膜については、ZnSe下地膜が最適であることを見出している。

第5章では、前章で得られた3種類の配向薄膜について、保磁力および初透磁率を測定した結果について述べている。(111)配向薄膜では保磁力1.90e、初透磁率1530~1920の値が得られ、他の配向薄膜に比較して優れた軟磁性を示している。また、熱的安定性についても、この薄膜は150°~200℃の向上が見られる。これらの結果は、定性的に第2章の結果と一致し、実効的な結晶磁気異方性の小さい(111)面を配向させることが、軟磁性の実現に有効であることを実験的に明らかにしている。

第6章では、軟磁性の改善法の1つである非磁性膜を挟んだ積層化を、配向薄膜に適用した結果について述べている。配向した薄膜を用いた2層膜では軟磁性が向上し、特に(111)配向2層膜では、保磁力0.50e、初透磁率2000~2400の良好な値を得ている。

第7章は、統括である。

以上要するに本論文は、高飽和磁化を有するFe-Si系多結晶薄膜について、軟磁性を得る為に結晶配向によって実効的な結晶磁気異方性を低下させる方法を提案し、3種類の主要結晶面の配向薄膜を育成してその磁氣的性質を測定し、この方法が有効であることを実験的に検証したもので、応用物理学および磁気工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。